

# **Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)**

International application number: PCT/JP2005/015993

International filing date: 01 September 2005 (01.09.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-255931  
Filing date: 02 September 2004 (02.09.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 November 2005 (03.11.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application: 2004年 9月 2日

出願番号 Application Number: 特願 2004-255931

パリ条約による外国への出願に用いる優先権の主張の基礎となる出願の国コードと出願番号

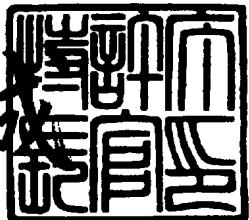
The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

出願人 Applicant(s): 積水化学工業株式会社

2005年10月19日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

中嶋誠



【書類名】 特許願  
【整理番号】 04P00488  
【提出日】 平成16年 9月 2日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C03C 27/12  
【発明者】  
【住所又は居所】 滋賀県甲賀郡水口町泉 1259 積水化学工業株式会社内  
【氏名】 丸本 忠  
【特許出願人】  
【識別番号】 000002174  
【氏名又は名称】 積水化学工業株式会社  
【代表者】 大久保 尚武  
【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 005083  
【納付金額】 16,000円  
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

複数のポリビニルアセタール樹脂層が積層された合わせガラス用中間膜であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層とが積層されていることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項 2】

さらに、紫外線吸収樹脂層が積層されていることを特徴とする請求項 1 に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 3】

透明ガラス板の間に、請求項 1 または 2 に記載の合わせガラス用中間膜が接着されることを特徴とする合わせガラス。

【書類名】明細書

【発明の名称】合わせガラス用中間膜および合わせガラス

【技術分野】

【0001】

本発明は、熱線遮蔽性に優れるとともに無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜およびこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。

【背景技術】

【0002】

合わせガラスは、外部衝撃を受けた際に物体が貫通しにくく、また物体により破損しても、ガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物などの窓ガラスに広く使用されている。この種の合わせガラスとしては、透明ガラス板の間に、接着性樹脂、例えは可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等の可塑化ポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜を接着させたものが汎用されている。

【0003】

しかし、上記従来の合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスは、安全性には優れているものの熱線遮蔽性が劣る。光線のなかでも、可視光線より長い約780nm以上の波長を持つ赤外線は、紫外線と比較するとエネルギー量が約10%程度と小さいものの、熱的作用が大きく、いったん物質に吸収されると熱として放出され温度上昇をもたらすことから、一般に熱線と呼ばれている。

【0004】

それゆえ、例えは自動車のフロントガラスやサイドガラスから入射してくる光線のうち、熱的作用の大きな赤外線（熱線）を遮断できるようにすれば、熱線遮蔽性が高まり、自動車内部の温度上昇を抑えることができる。近年の傾向として、自動車や建築物等において窓ガラスの開口部面積が増大しており、合わせガラスの熱線遮蔽性を高くし、これ等の窓ガラスの開口部に熱線遮蔽機能を付与する必要が増大している。

【0005】

ところで、下記の特許文献1には、熱線遮蔽性能を有する錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の熱線遮蔽微粒子を、可塑化ポリビニルアセタール樹脂等の接着性樹脂中に分散させてなる合わせガラス用中間膜およびこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスが開示されている。このような合わせガラス用中間膜および合わせガラスは、熱線遮蔽性に優れ且つ透明性にも優れており、自動車や建築物等の窓ガラスとして非常に有用である。

【0006】

しかし、このような熱線遮蔽性を有する合わせガラス用中間膜および合わせガラスは、中間膜中に分散された熱線遮蔽微粒子が、その性質として赤色領域の可視光線も遮断し、またその粒子径に応じて青色領域の可視光を散乱するため、結果として透過光は黄緑みがかかった色調を示し、得られる合わせガラス用中間膜および合わせガラスがわずかに黄緑みがかかった色を呈する。そのため、高度の熱線遮蔽性を得るために熱線遮蔽微粒子の濃度を高くすると、黄緑みの程度が増大する。それゆえ、自然な色に見える無色透明が要求される用途にあっては、熱線遮蔽微粒子の濃度を高くできず、無色透明で高度の熱線遮蔽性を得るには、まだ充分に満足のいくものではなく、この点で未だ改善すべき問題がある。

【特許文献1】WO01/25162号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は、上記の問題を解決するものであり、その目的とするところは、熱線遮蔽性能に優れるとともに、自然な色に見える無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜および合わせガラスを提供することにある。

【課題を解決するための手段】

## 【0008】

上記目的は、請求項1～3に記載の発明によって達成することができる。

すなわち、請求項1に記載の発明に係る合わせガラス用中間膜は、複数のポリビニルアセタール樹脂層が積層された合わせガラス用中間膜であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層とが積層されていることを特徴とするものである。

## 【0009】

また、請求項2に記載の発明に係る合わせガラス用中間膜は、請求項1に記載の発明において、さらに紫外線吸収樹脂層が積層されていることを特徴とするものである。

## 【0010】

さらに、請求項3に記載の発明に係る合わせガラスは、透明ガラス板の間に、請求項1または2に記載の合わせガラス用中間膜が接着されていることを特徴とするものである。

## 【0011】

以下本発明を詳述する。

熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層および紫外線吸収樹脂層を構成する樹脂としては、従来の合わせガラス用中間膜に用いられている接着性樹脂、例えば可塑化ポリビニルアセタール樹脂、エチレンー酢酸ビニル系共重合体樹脂、エチレンー(メタ)アクリル酸エステル系共重合体樹脂、ポリウレタンエラストマー系樹脂などが挙げられる。エチレンー酢酸ビニル共重合体樹脂は、その構成成分として酢酸ビニル成分を18～35重量%含有するものが好ましい。

これ等の接着性樹脂からなる中間膜を用いた合わせガラスは、透明性がよい、耐候性がよい、接着性がよい、耐貫通性がよい、ガラス破片が飛散しにくい等の合わせガラスに必要な基本的性能を有している。なかでも、可塑化ポリビニルアセタール樹脂が性能バランスに優れ好ましい。

## 【0012】

本発明に用いるポリビニルアセタール樹脂としては、特に限定されず、従来より合わせガラス用中間膜用樹脂として用いられているものを使用することができ、例えばアセタール化度60～75モル%、平均重合度800～3000のもの等が好適に用いられる。平均重合度が800未満であると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、逆に平均重合度が3000を超えると、樹脂膜の成形性が難しくなったり、樹脂膜の強度が強くなりすぎて、得られる合わせガラスの衝撃吸収性が低下したりすることがある。また、アセタール化度が60モル%未満であると、可塑剤との相溶性が低下して、耐貫通性の確保に必要な量の可塑剤を含有させることが難しくなることがあり、樹脂膜の吸湿性も高くなり、逆にアセタール化度が75モル%を超えると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがある。なかでも、ガラスに対する適正な接着力、透明性、耐候性に優れるという点からポリビニルブチラール樹脂が好適である。

## 【0013】

なお、ポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂の平均重合度およびアセタール化度は、例えばJIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や核磁気共鳴法(NMR)に基づいて測定することができる。

## 【0014】

上記ポリビニルアセタール樹脂を得るには、公知の方法が採用される。例えば所定のポリビニルアルコールを使用し、これを温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば0～95℃に保持して所要の酸触媒およびアルデヒドを加え、攪拌しながらアセタール化反応を進行させ、次いで反応温度を上げて熟成し反応を完結させ、その後、中和、水洗および乾燥を行ってポリビニルアセタール樹脂の粉末を得ることができる。

## 【0015】

ここで、上記ポリビニルアルコールは、通常ポリ酢酸ビニルを鹼化することにより得られ、鹼化度80～99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。このボ

リビニルアルコールの平均重合度は200～3000であることが好ましい。平均重合度が200未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、逆に3000を超えると、樹脂膜の成形性が悪くなり、樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が悪くなることがある。より好ましい平均重合度は500～2000である。なお、ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度および鹹化度は、例えばJIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

#### 【0016】

また、上記アルデヒドとしては、特に限定されず、一般に、炭素数が1～10のアルデヒドが用いられ、例えば、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-バニルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、n-ノニルアルデヒド、n-デシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n-ブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-バニルアルデヒドが好適に用いられる。特に好ましくは炭素数が4のブチルアルデヒドである。

#### 【0017】

可塑化ポリビニルアセタール樹脂は、上記のポリビニルアセタール樹脂に可塑剤を含有することにより得られる。可塑剤としては、特に限定されず、この種の中間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤を用いることができ、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機系可塑剤；有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよく、樹脂との相溶性等を考慮して、ポリビニルアセタール樹脂の種類に応じて使い分けられる。

#### 【0018】

一塩基性有機酸エステル系可塑剤としては、特に限定されず、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコール等のグリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプチル酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸（n-ノニル酸）、デシル酸等の一塩基性有機酸との反応によって得られるグリコール系エステルが挙げられる。なかでも、トリエチレングリコール-ジカプロン酸エステル、トリエチレングリコール-ジ-2-エチル酪酸エステル、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキシル酸エステル等のトリエチレングリコールの一塩基性有機酸エステルが好適に用いられる。

#### 【0019】

多塩基性有機酸エステル系可塑剤としては、特に限定されず、例えば、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4～8の直鎖状または分枝状アルコールとのエステル等が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好適に用いられる。

#### 【0020】

有機リン酸系可塑剤としては、特に限定されず、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

#### 【0021】

これ等の可塑剤の中でも、特に、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート（3GH）、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）、テトラエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、テトラエチレングリコール-ジ-2-ブチルセバケート等が好適に用いられる。

#### 【0022】

これ等の可塑剤の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20～60重量部であることが好ましい。20重量部未満であると、得られる中間膜や合わせガラ

スの衝撃吸収性が不充分となることがある、逆に 60 重量部を超えると、可塑剤がブリードアウトして、得られる中間膜や合わせガラスの光学歪みが大きくなったり、透明性やガラス板と中間膜との接着性が損なわれたりすることがある。より好ましい可塑剤の配合量は 30 ~ 50 重量部である。

#### 【0023】

本発明に用いる熱線遮蔽微粒子としては、特に限定されず、例えば、錫ドープ酸化インジウム（ITO）微粒子、アンチモンドープ酸化錫（ATO）微粒子、アルミニウムドープ酸化亜鉛（AZO）微粒子、インジウムドープ酸化亜鉛（IZO）微粒子、錫ドープ酸化亜鉛微粒子、珪素ドープ酸化亜鉛微粒子、アンチモン酸亜鉛、6 ホウ化ランタン微粒子及び 6 ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも 1 種が好適である。これらの熱線遮蔽微粒子を分散した樹脂層は、透過色がすべて淡黄緑色を帯びており、優れた赤外線（熱線）遮蔽機能を有する。

#### 【0024】

上記熱線遮蔽微粒子の平均粒子径は 80 nm 以下であることが好ましい。平均粒子径が 80 nm を超えると、熱線遮蔽微粒子による可視光線の散乱が顕著になり、得られる合わせガラス用中間膜の透明性が損なわれることがある。その結果、合わせガラスとしたときにヘイズが悪化して、例えば自動車のフロントガラスで要求されるような高度な透明性を満足することができなくなる。より好ましい平均粒子径は 10 ~ 80 nm である。なお、熱線遮蔽微粒子の粒子径および平均粒子径は、光散乱測定装置（例えば、大塚電子社製「DLS-6000AL」）を使用して、Ar レーザーを光源として動的光散乱法により測定することができる。

#### 【0025】

このような熱線遮蔽微粒子は、合わせガラス用中間膜中に均一に微分散されていることが好ましい。均一に微分散させることにより、熱線遮蔽性は全体にわたって高いものとなり、更に、ガラス板と中間膜との接着力が調節可能となり、合わせガラス用中間膜および合わせガラスの耐貫通性も優れたものとなる。

#### 【0026】

本発明の合わせガラス用中間膜においては、上記熱線遮蔽微粒子は、粒子径 100 nm 以上の粒子が 1 個 /  $\mu\text{m}^2$  以下に分散していることが好ましい。即ち、透過型電子顕微鏡で本発明の合わせガラス用中間膜を撮影、観察したときに、粒子径 100 nm 以上の上記熱線遮蔽微粒子が観察されないか、または、観察された場合には 1  $\mu\text{m}^2$  の枠の中心に粒子径 100 nm 以上の熱線遮蔽微粒子を置くと、かかる 1  $\mu\text{m}^2$  の枠内に粒子径 100 nm 以上の熱線遮蔽微粒子が他に観察されない状態となるよう分散しているのが好ましい。これにより、合わせガラスにしたときに、低ヘイズで透明性に優れ、全体に渡って高い遮熱性が得られる。なお、透過型電子顕微鏡による観察は、透過型電子顕微鏡（例えば、日立製作所社製 H-7100FA 型透過型電子顕微鏡）を用いて、加速電圧 100 kV で撮影することにより行うことができる。

#### 【0027】

これ等の熱線遮蔽粒子の配合量としては、全接着性樹脂（例えばポリビニルアセタール樹脂）100 重量部に対して 0.1 ~ 3 重量部が好ましい。配合量が 0.1 重量部未満であると、赤外線（熱線）遮蔽効果が充分に発揮されず、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの熱線遮蔽性が充分に向上しないことがあり、逆に配合量が 3 重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

#### 【0028】

一方、前記熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層は、接着性樹脂に前記熱線遮蔽微粒子を分散した樹脂層の有する黄緑色の色調に対して補色となる、即ち青色と赤色の色調の着色剤、もしくは、紫色の色調の着色剤を分散させることにより得られる。このための着色剤としては、特に限定されず、例えば、青色の着色剤としては、フタロシアニン系青色着色剤、インダンスレン系青色着色剤、アンスラキノン系青色着色剤な

などが挙げられ、赤色着色剤としては、ペリレン系赤色着色剤、アンスラキノン系赤色着色剤などが挙げられ、紫色着色剤としては、ジオキサジン系紫色着色剤、アンスラキノン系紫色着色剤、ジクロロキナクリドン系紫色着色剤などが挙げられる。

#### 【0029】

これ等の黄色の着色剤の配合量としては、全接着性樹脂100重量部に対して0.0005～0.05重量部が好ましい。配合量が0.0005重量部未満であると、補色作用が充分に発揮されず、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの無色透明性が充分に向上しないことがあり、逆に配合量が0.05重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

#### 【0030】

ここで、熱線遮蔽樹脂層に熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を添加しようとすると、添加した着色剤と熱線遮蔽微粒子との間で酸化還元反応が起こって、熱線遮蔽樹脂層が黄色味に着色してしまい無色透明性が損なわれることが判明した。このため、熱線遮蔽微粒子とこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤とは、同一層中に併用できない。

#### 【0031】

そこで、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層と別々に積層すると、意外にも、得られる合わせガラス用中間膜の色調を、自然な色に見えるように無色透明にすることができることがわかった。この場合、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とは隣接していることが、無色透明化が効果的に達成できる点で好ましい。

#### 【0032】

また、紫外線吸収樹脂層は、接着性樹脂に紫外線吸収剤を含有させることにより得られる。紫外線吸収剤としては、特に限定されず、マロン酸エステル系化合物、シュウ酸アリド系化合物、ベンゾトリニアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、ヒンダードアミン系化合物等の紫外線吸収剤が挙げられる。なかでも、ベンゾトリニアゾール系化合物、例えば2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリニアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌビンP」)、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-*t*-メチルフェニル)ベンゾトリニアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌビン320」)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-*t*-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリニアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌビン326」)、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-アミルフェニル)ベンゾトリニアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌビン328」)などが好ましい。また、ヒンダードアミン系化合物、例えばアデカーガス社製の商品名「アデカスタブLA-57」なども好ましい。

#### 【0033】

これ等の紫外線吸収剤の配合量としては、全接着性樹脂100重量部に対して0.1～5重量部が好ましい。配合量が0.1重量部未満であると、紫外線吸収遮断作用が充分に発揮されず、また得られる合わせガラス用中間膜の耐候性や耐光性が充分に向上しないことがあり、逆に配合量が5重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

#### 【0034】

なお、熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層、紫外線吸収樹脂層には、接着性樹脂が可塑化ポリビニルアセタール樹脂の場合は、有機酸または無機酸のアルカリ金属塩或いはアルカリ土類金属塩、变成シリコーンオイル等の接着力調整剤；*t*-ブチルヒドロキシトルエン(住友化学社製の商品名「スマライザーBHT」)、テトラキス-(メチレン-3-(3',5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)メタン(チバガイギー社製の商品名「イルガノックス1010」)等の酸化防止剤を添加してもよく、更に光安定剤、界面活性剤、難燃剤、帶電防止剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の従来公知

の添加剤が添加されていてもよい。

#### 【0035】

特に、酸化防止剤は少なくとも熱線遮蔽樹脂層に含有されていることが好ましく、より好ましくは熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層、紫外線吸収樹脂層のいずれの樹脂層にも酸化防止剤が含有されることが好ましい。上記樹脂層に酸化防止剤を含有させておくことにより、着色を伴う酸化反応を抑えることができる。いずれの樹脂層にも酸化防止剤を含有させておくことで、たとえ酸化防止剤が消費されてもそれぞれの樹脂層間の酸化防止剤が移行して濃度が保たれるため、酸化反応の抑制効果を維持しやすい。

#### 【0036】

また、紫外線により熱線遮蔽微粒子が着色を伴う反応を引き起こすため、熱線遮蔽樹脂層への紫外線の透過を抑制するために、上記のような紫外線吸収層を別に設けておくことが好ましい。

#### 【0037】

紫外線吸収樹脂層には、酸化防止剤を含有させてもよいが、紫外線吸収剤とともに多量の酸化防止剤を含有させると、経時で透明性が悪化することがあるため、紫外線吸収剤や酸化防止剤はそれぞれの樹脂層に少量づつ含有させておくことが好ましい。具体的には、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層に含まれる酸化防止剤の割合は、紫外線吸収樹脂層の濃度を1とした場合に、熱線遮蔽樹脂層が0.7~1、色調補正樹脂層が0.3~1であることが好ましい。なお、紫外線吸収剤としてベンゾトリアゾール系化合物とヒンダードアミン系化合物とを併用した場合は、酸化反応の抑制が特に必要とされることから、酸化防止剤の添加量を増やしておくことが好ましい。いずれの層にも酸化防止剤を含有させておくことで、たとえ酸化防止剤が消費されてもそれぞれの層間の酸化防止剤が移行して濃度が保たれるため酸化反応の抑制効果が維持しやすい。

#### 【0038】

本発明の合わせガラス用中間膜の全体の膜厚は、合わせガラスとして最小限必要な耐貫通性や耐候性を考慮すると、実用的には通常の透明な合わせガラス用中間膜と同様に、一般に、0.3~1.6mmの膜厚範囲が好ましい。特に、0.7~1.6mmの膜厚範囲が好ましい。

#### 【0039】

特に、この合わせガラス用中間膜を、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層とで構成する場合は、中間膜の全体の膜厚に対して熱線遮蔽樹脂層の厚みが15~25%、色調補正樹脂層の厚みが5~25%、紫外線吸収樹脂層の厚みが50~80%となるように構成するのが好ましい。また、合わせガラス用中間膜を、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とで構成する場合は、中間膜の全体の膜厚に対して熱線遮蔽樹脂層の厚みが50~80%、色調補正樹脂層の厚みが20~50%となるように構成するのが好ましい。

#### 【0040】

すなわち、色調補正樹脂層が厚くなりすぎると透明性が低下する。したがって、無色透明性を確保できる熱線遮蔽樹脂層の厚みの上限も制限される。また、色調補正樹脂層の厚みが薄すぎると、充分な色調補正が難しくなる。また、熱線遮蔽樹脂層が薄すぎると、黄緑みの程度は低減されてわずかになるが、熱線遮蔽性能を充分に確保することが難しくなる。

#### 【0041】

なお、上記熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層とを積層してなる合わせガラス用中間膜および上記熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とを積層してなる合わせガラス用中間膜には、さらに、熱線遮蔽微粒子やこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を含有しない通常の透明な合わせガラス用中間膜と同様な組成の透明樹脂層を積層して中間膜としてもよい。

#### 【0042】

上記熱線遮蔽樹脂層は、前記接着性樹脂、例えはポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽微粒子、可塑剤および必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラスチックグラフ、

ニーダー、バンパリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法により得ることができる。また、熱線遮蔽微粒子を可塑剤にマイクロビーズミル等により分散しておき、その後ポリビニルアセタール樹脂と熱線遮蔽微粒子分散可塑剤とをミキシングロール等で混練し、シート状に製膜することにより熱線遮蔽樹脂層を得ることができる。

#### 【0043】

また、上記色調補正樹脂層は、前記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹脂、上記熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤、可塑剤および必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラスチックグラフ、ニーダー、バンパリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法により得ることができる。

#### 【0044】

さらに、上記紫外線吸収樹脂層は、前記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹脂、紫外線吸収剤、可塑剤および必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラスチックグラフ、ニーダー、バンパリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法により得ることができる。

#### 【0045】

本発明の合わせガラス用中間膜は、上記のように別々に製膜された熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層、さらに必要に応じて紫外線吸収樹脂層とを重ね合わせ、これを加熱加圧することにより一体化する方法により製造することができる。また、熱線遮蔽樹脂層の製膜用配合物と色調補正樹脂層の製膜用配合物、さらに必要に応じて紫外線吸収樹脂層の製膜用配合物とを、多層押出し法により一体に製膜する方法により製造することができる。また、別の方法として、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層、さらに必要に応じて紫外線吸収樹脂層とを、二枚のガラス板の間に重ね合わせ、これを加熱加圧することにより一体化して、合わせガラスの製造と同時に製膜する方法により製造することができる。

#### 【0046】

この場合、熱線遮蔽微粒子やこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を含有しない通常の透明樹脂層を併用してもよい。この通常の透明樹脂層や上記紫外線吸収樹脂層を併用する際には、得られる合わせガラス用中間膜の色調の無色透明化を効果的に達成するために、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とが隣接するように積層するのが好ましい。

#### 【0047】

本発明の合わせガラスは、通常の合わせガラスの製法と同様な方法により製造することができる。例えば、少なくとも二枚の透明ガラス板の間に、上述の合わせガラス用中間膜を挟み、これを押圧ロールに通して扱くか或いはゴムバッグに入れて減圧吸引し、ガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気しながら約70～110℃で予備接着して積層体とし、次いでこの脱気された積層体をオートクレーブに入れるか或いはプレスを行い、約120～150℃で、約0.98～1.47MPaの圧力で本接着を行うことにより製造される。

#### 【0048】

なお、透明ガラス板としては、特に限定されず、一般に使用されている透明ガラス板を使用することができる。このような透明ガラス板としては、例えば、フロート板ガラス、熱線吸収板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス等の各種無機ガラス板：ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板等の有機ガラス板が挙げられる。これらのガラス板は、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用されてもよい。なかでも、熱線吸収板ガラスを用いることが好ましい。なお、これ等のガラス板の厚みは、用途によって適宜選択されればよく、特に限定されるものではない。

#### 【発明の効果】

#### 【0049】

本発明によれば、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層により、合わせガラスから入射してくる光線のうち、熱的作用の大きな赤外線（熱線）が吸収ないしは反射されることにより遮断され、車内或いは室内の温度上昇が抑えられ、人体や物体の熱的障害を防止することができる。しかも、遮熱微粒子の存在により熱線遮蔽樹脂層は透過色が黄緑みがかかった色調を呈するが、上記遮熱微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層により、熱線遮蔽微粒子に由来する熱線遮蔽樹脂層の黄緑みがかかった色調が無彩色化され、かつ熱線遮蔽微粒子と色調補正用着色剤等が別の層に含まれているので、熱線遮蔽微粒子と色調補正用着色剤等が層内で接触することなく、両者の反応による着色を生じない。その結果として中間膜および合わせガラスが無色透明の自然な色に見える状態が持続する。さらに、紫外線吸収樹脂層を有するものは、紫外線による熱線遮蔽樹脂層の変色が防止される上、紫外線カット性能が付与され、内装や備品の褪色、変色を防止することができる。

#### 【0050】

したがって、本発明の合わせガラス用中間膜および合わせガラスの用途は、特に限定されないが、例えは、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス；航空機や電車等の乗り物のガラス部位、建築物の窓ガラス等のうち、特に熱線遮蔽と無色透明性が要求される場合に好適に使用される。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0051】

以下、本発明の具体的な実施例を挙げることにより、本発明を詳細に説明する。なお、本発明はこれ等の実施例に限定されるものではない。

#### 【実施例1】

#### 【0052】

##### (1) ポリビニルブチラール樹脂の合成

純水2890重量部に、平均重合度1700、鹼化度99.2モル%のポリビニルアルコール275重量部を加えて加熱溶解した。この反応系を15℃に温度調節し、35重量%の塩酸触媒201重量部とn-ブチルアルデヒド157重量部を加え、この温度を保持して反応物を析出させた。その後、反応系を60℃で3時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で2時間水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。この樹脂の平均ブチラール化度は68.5モル%であった。

#### 【0053】

##### (2) 熱線遮蔽微粒子分散可塑剤の調製

トリエチレングリコールージー2-エチルブチレート(3GO)40重量部と、錫ドープ酸化インジウム(ITO)微粒子1重量部を仕込み、これに分散剤として長鎖アルキルリン酸エステル0.1重量部を添加して、水平型のマイクロビーズミルにて上記可塑剤中にITO微粒子を分散させて、熱線遮蔽微粒子分散可塑剤を調製した。この熱線遮蔽微粒子分散可塑剤中のITO微粒子の平均粒径は35nmであった。

#### 【0054】

##### (3) 熱線遮蔽樹脂層となる中間膜の作製

上記(1)で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に、上記(2)で得られた熱線遮蔽微粒子分散可塑剤40重量部を加え、更に接着力調整剤として全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの熱線遮蔽樹脂層となる中間膜を作製した。この膜中のITO微粒子の平均粒径は56nmであり、粒径が100nm以上の粒子は観察されなかった。

#### 【0055】

##### (4) 色調補正樹脂層となる中間膜の作製

上記(1)で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に、上記ITO微粒子の黄緑みがかかった色と補色となる色調に調整した、青色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-5A1083N」)0.15重量部と赤色の顔料トナー(住化カラー社製の

商品名「SG-100N」) 0.04重量部を加え、更に接着力調整剤として全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酛酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.38mmの色調補正樹脂層となる中間膜を作製した。

#### 【0056】

##### (5) 紫外線吸収樹脂層となる中間膜の作製

上記(1)で得られたポリビニルチラール樹脂100重量部に、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤(チバガイギー社製の商品名「チヌビンP」)とヒンダードアミン系紫外線吸収剤(アデカーガス社製の商品名「アデカスタブルA-57」)の混合物(重量比7:3)2重量部を加え、更に接着力調整剤として全系に対してMg含有量が60ppmとなるように2-エチル酛酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.38mmの紫外線吸収樹脂層となる中間膜を作製した。

#### 【0057】

##### (6) 合わせガラス用中間膜および合わせガラスの製造

上記色調補正樹脂層となる中間膜、熱線遮蔽樹脂層となる中間膜、紫外線吸収樹脂層となる中間膜の順に重ね、プレスによりいったん三層構成の合わせガラス用中間膜を製造した。この三層構成の合わせガラス用中間膜を、二枚の透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ2.5mm)で挟み、これをゴムバック内に入れ、2.6kPaの真圧度で20分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に90℃で30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスを、エアー式オートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを製造した。この合わせガラスの断面図を図1に示す。図1において、10は合わせガラス、10aは熱線遮蔽樹脂層、10bは色調補正樹脂層、10cは紫外線吸収樹脂層、10dおよび10eは透明なフロートガラス板である。

#### 【実施例2】

#### 【0058】

紫外線吸収用中間膜を用いなかったこと以外は、実施例1と同様の方法により二層構成の合わせガラス用中間膜を製造し、この二層構成の合わせガラス用中間膜を用いて、実施例1と同様の方法により合わせガラスを製造した。この合わせガラスの断面図を図2に示す。図2において、10は合わせガラス、10aは熱線遮蔽樹脂層、10bは色調補正樹脂層、10dおよび10eは透明なフロートガラス板である。

#### 【0059】

##### (比較例1)

熱線遮蔽樹脂層となる中間膜に青色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-5A1083N」)0.075重量部と赤色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-100N」)0.02重量部を加え、色調補正樹脂層となる中間膜に青色の顔料トナー0.15重量部と赤色の顔料トナー0.04重量部を加えなかった以外は実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜を製造し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて、実施例1と同様の方法により合わせガラスを製造した。

#### 【0060】

##### (評価)

上記実施例1、2および比較例1で得られた合わせガラス用中間膜および合わせガラスについて、下記の方法により可視光透過率および日射透過率の測定を行い、熱線遮蔽性能および無色透明性の評価を行った。なお、図1の合わせガラス10では、紫外線吸収樹脂層10dを外側(屋外)と想定し、図2の合わせガラス10では、熱線遮蔽樹脂層10dを外側(屋外)と想定して測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0061】

##### (1) 可視光透過率および日射透過率の測定

直記分光光度計(島津製作所社製「UV3100」)を使用して、得られた合わせガラ

スの300～2500nmの透過率を測定し、JIS Z 8722およびJIS R 3106に従って、380～780nmの可視光透過率および300～2500nmの日射透過率を求めた。

【0062】

【表1】

	実施例1	実施例2	比較例1
可視光線透過率 (%)	84	84	84
日射透過率 (%)	54	54	54
合わせガラスの外観	無色透明	無色透明	黄色みあり

【図面の簡単な説明】

【0063】

【図1】本発明の合わせガラスの一実施態様を示す断面図である。

【図2】本発明の合わせガラスの他の実施態様を示す断面図である。

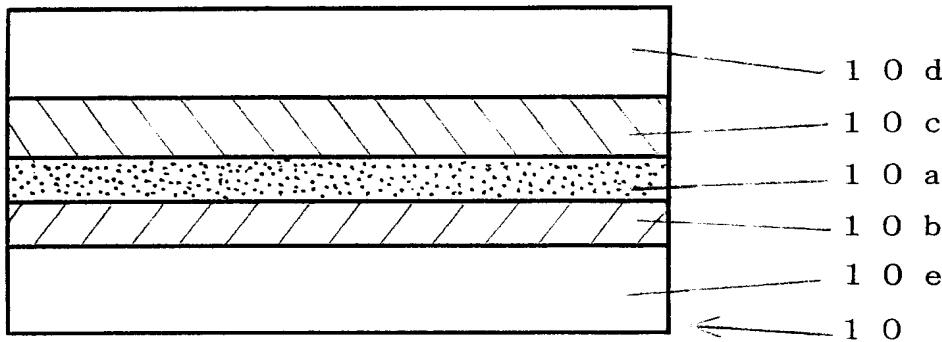
【符号の説明】

【0064】

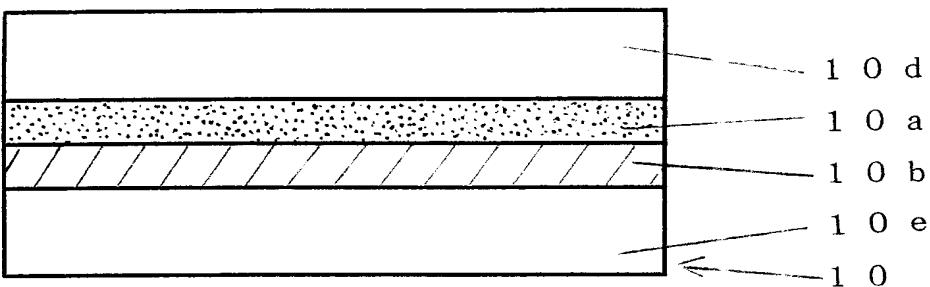
- 10 合わせガラス
- 10 a 热線遮蔽樹脂層
- 10 b 色調補正樹脂層
- 10 c 紫外線吸収樹脂層
- 10 d 透明なフロートガラス板
- 10 e 透明なフロートガラス板

【書類名】図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】要約書

【要約】 熱線遮蔽性能に優れるとともに、自然な色に見える無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜および合わせガラスを提供する。

【解決手段】 本発明の合わせガラス用中間膜は、複数の可塑化ポリビニルアセタール樹脂からなる積層体であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層とが積層されてなる。さらに紫外線吸収樹脂層が積層されていることが好ましい。上記熱線遮蔽微粒子としては、錫ドープ酸化インジウム（ITO）微粒子、アンチモンドープ酸化錫（ATO）微粒子などが用いられる。色調補正樹脂層には青色系の着色剤と赤色系の着色剤、もしくは、紫色系の着色剤が分散されて用いられる。本合わせガラス中間膜と透明ガラス板とを積層することにより合わせガラスを得る。

【選択図】 図1

出願人履歴

000002174

19900829

新規登録

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号  
積水化学工業株式会社